

在线同位素分离器激光离子源的元素 选择性和激光技术*

赵之正 杨永锋 郑兆妙 祖凯玲

王旭东 Pat. Somerville 蔡喜臣

(中国科学院近代物理研究所 兰州 730000)

尚仁成 徐四大

(清华大学现代物理系 北京 100084)

李克平

(McGill 大学物理系 加拿大)

摘要 分析了目前在线同位素分离器改进的必要性和可能性. 介绍了激光多步共振电离原理和激光离子源原理. 具体分析了热毛细管式激光离子源元素选择性的产生及其影响的因素. 描述了所使用的激光器和激光技术. 对热毛细管式的激光离子源作了元素选择性实验, 结果表明该离子源的元素选择性达到了50—10000.

关键词 激光离子源 激光技术 元素选择性 在线同位素分离器

1 引言

在线同位素分离器是研究远离 β 稳定线核的主要工具, 80年代末以来, 放射性束流装置显示出很高的灵敏度, 它不受元素化学性质的影响, 能用于高温难熔元素和短寿命核素($< 1\mu\text{s}$)的分离, 但是, 经过认真分析和全面的对比后发现, 采用中低能重离子炮弹和在线同位素分离器分离的常规方法仍具有不可替代的优点: 即高产额, 更适用于核寿命长于秒数量级的衰变特性测量, 同时产物核的剩余激发能也比放射性束装置产生的低, 如 $47\text{MeV} / \text{u} \text{ }^{12}\text{C} + \text{}^{197}\text{Au}$ 反应产生的Ir同位素分布形状证明, 在相同的出射道, 中能轻炮弹打重靶比相对论能量重炮弹打轻靶产物核的剩余激发能低, 因而在重核丰中子质量区轻

1997-08-01收稿

* 中国科学院和国家自然科学基金(19675051)资助

炮弹打重靶产生的截面大于后者^[1]。又因为后者的束流强度低(目前国际上最好的一台相对论重离子加速器是 GSI 的 SIC 重炮弹的束流约 10^7 PPS, 而几个中能重离子加速器的较轻的重离子的束流是 10^{11} — 10^{12} PPS), 而且靶厚度和分析分离装置的效率并无大的差别, 所以, 目前的中能重离子加速器在使用在线同位素分离器后的产额比放射性束流装置大 10^3 — 10^4 倍^[2]。以上说明以分离靶碎片为主的在线同位素分离器在核寿命不是很短的核区, 仍然具有不可替代的优势, 有进一步发展的必要。

要提高在线同位素分离器的性能, 就必须克服不能分离高温难熔元素和元素选择性不高等缺点。为了克服这些主要缺点, 从 70 年代以后, 离子制导式分离器离子源和激光离子源都有了很大发展。在离子制导式分离器上利用轻炮弹打靶的熔合和裂变反应已经发现了不少新核素。80 年代后期至今, 提出的激光离子源共有 3 种类型: 即热毛细管型^[3], 增强离子制导型^[4,5]和氦传输沉积再用激光解吸型^[6]。其中热毛细管式激光离子源已经在 CERN 的在线同位素分离器上使用, 对稀土元素的电离效率达到 10%—15%, 元素选择性达到 10—10000, 并用于发现 Ag 的丰中子新核素和衰变特性测量的实验中, 已经发现了 $^{125,126,127}\text{Ag}$ 等新核素^[7], 比同时进行的放射性束流装置在裂变区发现的新核素多了两个 Ag 同位素^[8]。这表明了激光离子源的使用将在很大程度上改善在线同位素分离器的分离效率、分离速度, 元素选择性和高温难熔元素的分离等几个主要方面的性能。

基于上述分析并结合本所的中能重离子加速器及在线同位素分离器的条件, 我们确定研究 $A > 170$ 丰中子质量区新核素和核衰变特性, 为此研制了一台用于本所在线同位素分离器的激光离子源, 同时选择热毛细管式的激光离子源作为首先研制的类型。

2 原理

使用可调谐激光能将原子从基态共振激发到第一激发态, 在原子未退激前由第二束共振激光激发到第二激发态, 再由第三束共振激光激发到自电离态产生离子, 这种电离过程称激光多步共振电离。如果激光的线宽足够窄, 那么激光多步共振电离过程将具有很好的元素选择性。元素选择性 S 的意义是选择一种需要的元素, 抑制不需要的元素的能力。由于激光共振激发和电离与非共振激发和电离的截面差别很大, 而三步共振电离的总效率是每一步效率的乘积, 这使得总的共振与非共振效率之比可以达到 10^{10} — 10^{18} 之多^[9], 也就是说, 从基本原理看, 多步共振电离方式的激光离子源可以具有非常好的元素选择性。激光以多步共振电离过程产生的唯一元素的离子引入分离器的磁铁, 作质量分离, 最终得到单一同位素的离子流, 这个激光电离器称激光离子源。由于存在不带有元素选择性的非共振电离和其它电离因素产生的本底离子的影响, 实际上元素选择性远达不到理论预言值。元素选择性 S 等于激光共振电离产生的离子数 N_j 与所有其它因素产生的这个元素的所有离子数 N_0 之比, 即 $S = N_j / N_0$ 。显然, 要提高元素选择性就应包括增加激光共振电离效率和降低其它因素的电离效率两个方面。

热毛细管式激光离子源的电离器是一个具有确定高温的金属毛细管, 被电离元素呈单原子状态扩散入毛细管, 并被射入毛细管的共振激光所电离。它的总激光共振电离效率等于激光束对管内中性原子流的时间与空间的覆盖率 ϵ_t 和激光共振电离效率 ϵ_j 之积, 即

总电离效率 $\eta = \varepsilon_i \varepsilon_j$. 目前市售的激光器只能使用脉冲激光器, 同时还需把激光束聚焦在一个小范围内才能使激光功率密度足够高, 达到饱和和多步共振电离. 由于高温下原子运动的平均速度约 400—500m/s, 对于有限大小的激光光斑, 必须使用高重复频率的脉冲激光才能达到对原子的高时间和空间覆盖率^[9]. 按照 V. I. Mishin 的在文献 [3] 中, 毛细管内激光电离效率为

$$\eta = f \cdot \varepsilon_j / (f \cdot \varepsilon_j + d \cdot v / 4L^2), \quad (1)$$

其中, f 为激光脉冲重复频率, d 为毛细管的内径, L 为毛细管的长度, v 为原子运动线速度. 如果设 $\varepsilon_j = 0.8$, $f = 10\text{kHz}$, $d = 2\text{mm}$, 在 2000K 温度下, 质量数为 200 的原子均方根速度值 $v = 5 \times 10^2 \text{ m/s}$, 此时电离效率是 0.95.

在毛细管内产生离子的因素主要是热电离和表面电离. 根据毛细管内的等离子体的状态分析, 在等离子体内, 热运动的电子与原子碰撞电离产生的离子两者处于一种热力学平衡状态, 设毛细管内的等离子体是准中性 (即 $n_e \cong n_i$), 可以用 Eggert-Saha 方程描述等离子体的状态^[10]:

$$n_e n_i / n_0 = (2\sigma_i / \sigma_0) (2\pi mkT / h^2)^{3/2} \exp(-W_a / kT), \quad (2)$$

n_e 为等离子体内的电子密度, n_i 是等离子体内正离子密度, n_0 是等离子体内原子密度, m 是电子质量, W_a 是元素的电离电位, k 为玻尔兹曼常数, T 是等离子体温度, h 是普朗克常数, σ_i 和 σ_0 是离子和原子基态的统计权重. 在准中性假设下, 毛细管内等离子体的热电离的电离度可表示为

$$\gamma = (2\sigma_i / \sigma_0) (2\pi m / h^2)^{3/2} \cdot P^{-1} (kT)^{5/2} \cdot \exp(-W_a / kT), \quad (3)$$

其中 $P = kT(n_e + n_i + n_0)$. 热电离效率

$$\varepsilon_r = n_i / (n_i + n_0) = [\gamma / (1 + \gamma)]^{1/2}. \quad (4)$$

在 2000K 温度时, 另一个主要的电离机制是表面电离. 由于高温时金属表面具有很强的电子发射能力, 所以在表面附近的电子密度为

$$n_{e_0} = 2(2\pi mkT / h^2)^{3/2} \exp(-\varphi / kT), \quad (5)$$

这里, φ 是电子逸出功. 若 $n_{e_0} \cong n_e$, 公式 (2) 和 (5) 相除得到表面电离的电离度为

$$\alpha = n_i / n_0 = (\sigma_i / \sigma_0) \exp[(\varphi - W_a) / kT], \quad (6)$$

表面电离效率为

$$\beta = n_i / (n_i + n_0) = \alpha / (1 + \alpha). \quad (7)$$

例如在 2300K 时, Ta($\varphi = 4.15\text{eV}$) 表面对 Yb($W_a = 6.3\text{eV}$) 的表面电离效率是 2.4×10^{-5} , 热电离效率是 4.1×10^{-3} ^[10]. 在 2000—3000K 范围内主要电离机制是热电离. 但是, 如果 W_a 接近或小于电子逸出功 φ , 那么表面电离将是最大的, 甚至达到 100% 的表面电离. 如果原子、离子和电子的密度是已知的, 那么元素选择性 $S \propto \eta / (\varepsilon_r + \beta)$. 从上述分析中可以看出, 在满足饱和电离的激光功率条件下, 热毛细管的元素选择性取决于脉冲重复频率和足够大的 L/d 值, 毛细管材料的电子逸出功和被电离元素的电离电位以及工作温度. 特别是在被电离元素的电离电位小于壁材料的电子逸出功时, 将因为表面电离效率增大而使元素选择性降低, 直至完全没有元素选择性.

在毛细管内的离子由于热运动而有可能导致离子碰壁, 使离子中性化, 但是由于表面电子的发射, 当有足够电子密度时, 在表面附近可产生足够高的能够阻止离子碰壁的等离

子体鞘势 Φ_p ,

$$\Phi_p = (kT/e) \ln(n_{ep}/n_e), \quad (8)$$

n_{ep} 为等离子体内电子密度 ($n_{ep} \geq n_e$). 毛细管内充满着等离子体, 所以, 毛细管内的大部分空间处于无电场的负电位, 仅在管壁附近约十分之几毫米的范围内有很大的电位降, 这就是等离子体鞘势. 例如在 2000K 温度下 Ta 表面等离子体鞘势大约是 $2.2eV^{[10]}$, 而均方根离子动能小于 $0.3eV$, 足以阻止离子碰壁. 另外, 毛细管使用直流电加热, 两端产生 1—3V 的电位差, 使毛细管内产生弱电场, 能引导正离子移动到离子引出孔. 这两种因素将使离子被高效率引出. 在耐高温的几种材料中, 只有 Ta 和 Nb 具有较低电子逸出功 ($4.15eV$ 和 $3.65eV$). 如果使用具有更低电子逸出功的碳化物或氧化物表面, 将具有更好的元素选择性. 但是此时必须考虑表面吸附热 Q 值, 高表面吸附热将增加原子吸附于表面的时间, 对短寿命核的分离不利^[11].

总之, 热毛细管式激光离子源在恰当的选择了低电子逸出功的毛细管的材料和高电势以及高的元素饱和蒸汽压条件下, 将具有非常好的元素选择性.

3 激光技术

为了实现高电离效率, 本实验在连续激光和脉冲激光两者之中选择了脉冲激光; 为了对热运动原子有高的时间和空间覆盖率, 在脉冲重复频率上选择了高重复频率; 在泵浦激光器类型上选择了具有窄脉冲宽度的铜蒸气激光器, 并且选择了便于使用的工业级的封闭式激光管. 它由一台 20W 的激光器作为振荡器和 2 台 40W 激光器的作为放大器组成, 最大输出的总功率约 90W, 其中绿光 (波长 510nm) 功率占 55%, 黄光 (578nm) 功率占 45%, 脉冲频率固定为 10kHz, 光脉冲宽度为 25ns. 从振荡器出口到染料激光器的距离约 10m 长, 为了提高激光传输到染料激光器的效率和在染料激光器的染料池上得到最细的聚焦光斑, 除在振荡器上使用了非稳腔外, 还采用了小孔过滤技术, 使输出光的发散角小于 $0.5mrad$, 输出光斑直径为 20mm (见图 1). 使用 3 台上述激光束泵浦的染料激光器得到三束波长可变的激光. 用滤光片、半透半反片和高度全反射片使激光按照波长和功率的不同要求分三束传送到上述 3 台染料激光器, 并用缩束镜使光斑的直径与染料池宽度相等. 在使用 Rhodamine 110、Rhodamine 6G、Rhodamine B、Kiton Red 和 DCM 以及改变染料浓度和混合染料条件下, 在 530—700nm 波长范围内能得到满意的功率. 在只使用绿光泵浦时, 输出的三束光的总合功率约 3W. 我们使用的染料激光器输出光的谱线宽度对 λ_1 和 λ_2 的激光为 7GHz, 对 λ_3 的激光为 24GHz (见图 2).

从染料激光器出口到在线同位素分离器离子源的距离约 25m 以上, 用高度全反射镜能将激光传输到离子源. 在分离器的磁铁前放置的反射镜能使激光穿过内径 1.7mm 长 4cm 的毛细管, 该反射镜设置在分离器离子流的水平面内并与离子流轴线相距 4cm, 使激光束同离子流轴线呈 1° 角 (见图 1). 在距离离子源 7m 处用 3 个反射镜分别对三束激光做方向微调, 使三束激光在毛细管内达到重合, 3 个反射镜所占面积对离子源的角度小于 0.5° (毛细管的接受角为 3°). 在入射镜焦距与出射镜焦距之比为 1:3—1:5 的望远镜时, 微调入射镜与出射镜之间的距离能使焦点光斑直径接近 1.7mm (激光穿过 2mm 孔的效率

为 60%—80%)。这个聚焦结果已经接近衍射极限(计算衍射极限是 0.9mm)。从染料激

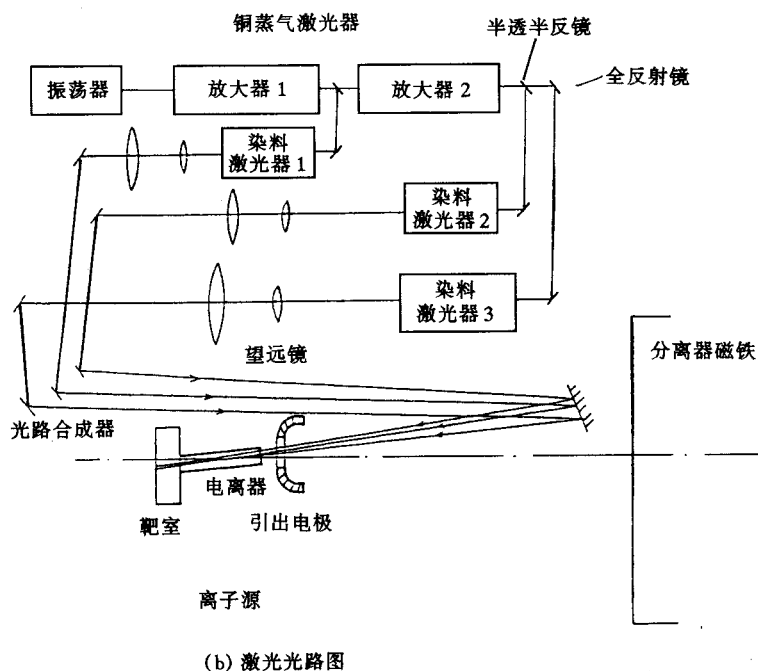
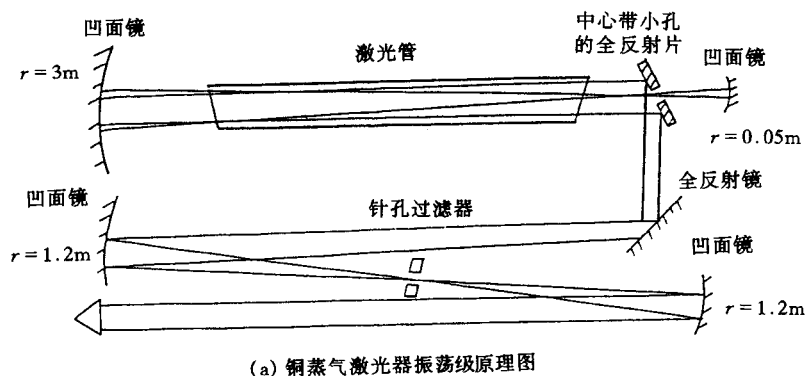


图1 激光器及光路示意图

光器出口到分离器真空室外的传输效率达到 40%—50%。在调整中发现三束光的合成、聚焦和传输效率都受到染料激光器调整的极大影响,因此必须调整染料激光器使自发超辐射成分尽可能达到最低和光斑形状小而圆的程度。

由于原子能级有一定的寿命,而且在激光脉冲宽度范围内激发粒子数有一个增加的过程,所以三个激光束的脉冲不应当同时到达。通过泵浦光光程和染料激光器输出光光程的调整使 λ_1 、 λ_2 和 λ_3 激光脉冲一个比一个慢 2—5ns。

使用市售空心阴极灯可以方便地找到被电离元素的波长,并且能实现波长漂移的监测。

已经实现了稀土元素 Yb 和 Tm 的多步共振电离, 激发与电离的能级和路线图见图 2.

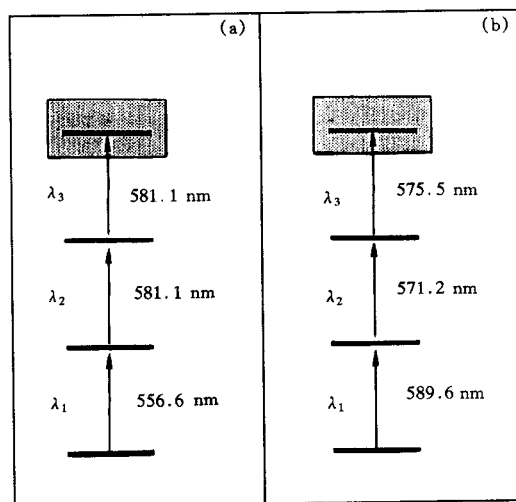


图 2 Yb 和 Tm 的激发与电离的路线图

(a) Yb (W_i : 6.3eV); (b) Tm (W_i : 6.2eV).

4 元素选择性的实验和结果

为了检验热毛细管式激光离子源的元素选择性, 在检验真空室内放入长为 3.5cm 内径为 1.7mm 的 Ta 和 Nb 毛细管, 用直流电加热, 控制毛细管上的温度不均匀性在最高温度下小于 100°C , 在激光电离前毛细管加热至 2400K 并维持 2h 以上, 使本底电流减少到最小. 经测试, 在 2400K 时, 无原子流时的离子流本底比有原子流时的离子流本底小两个数量级. 用 Ta 舟加热被电离的元素, 使蒸发的原子达到毛细管的一端, 在这个原子源与毛细管之间用带一个小洞的厚铜板隔开, 以使改变毛细管温度时不致影响原子流的稳定性. 在毛细管另一端置引出孔, 使离子流引出并经过偏转到达法拉第筒 (见图 3), 用束流

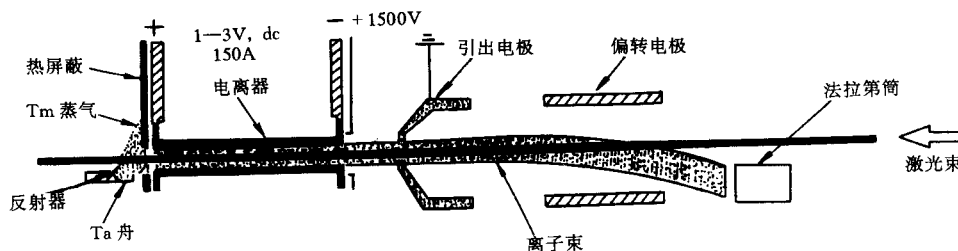


图 3 元素选择性检验装置

积分器记录离子流的大小. 激光束通过玻璃窗引入真空室, 经过偏转板的间隙和引出孔进入毛细管. 采用第三节所述的激光器及激光技术, 观察了稀土元素 Tm 的激光共振电离, 三束激光的传输距离为 14m. 使用的 Tm 激发和电离的路线见图 2, 波长 λ_1 为 589.6nm , 波长 λ_2 为 571.2nm 和波长 λ_3 为 575.5nm , λ_3 使 Tm 原子激发到自电离态而电离. 其

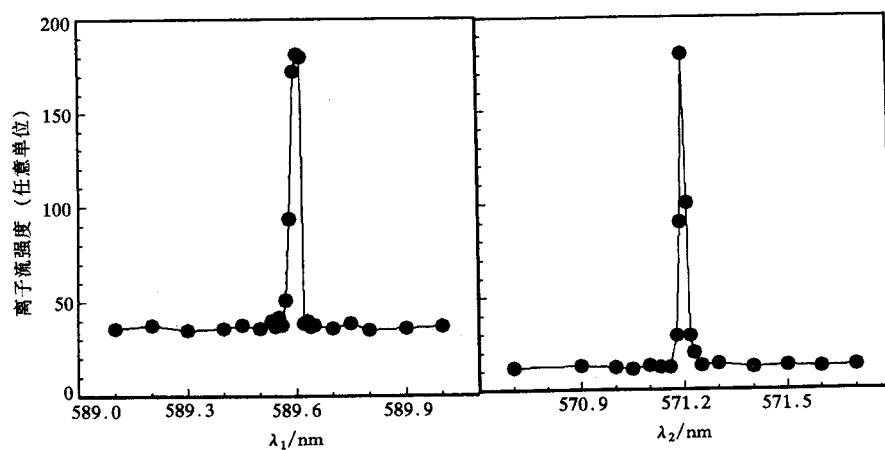


图4 Tm离子流与波长的关系

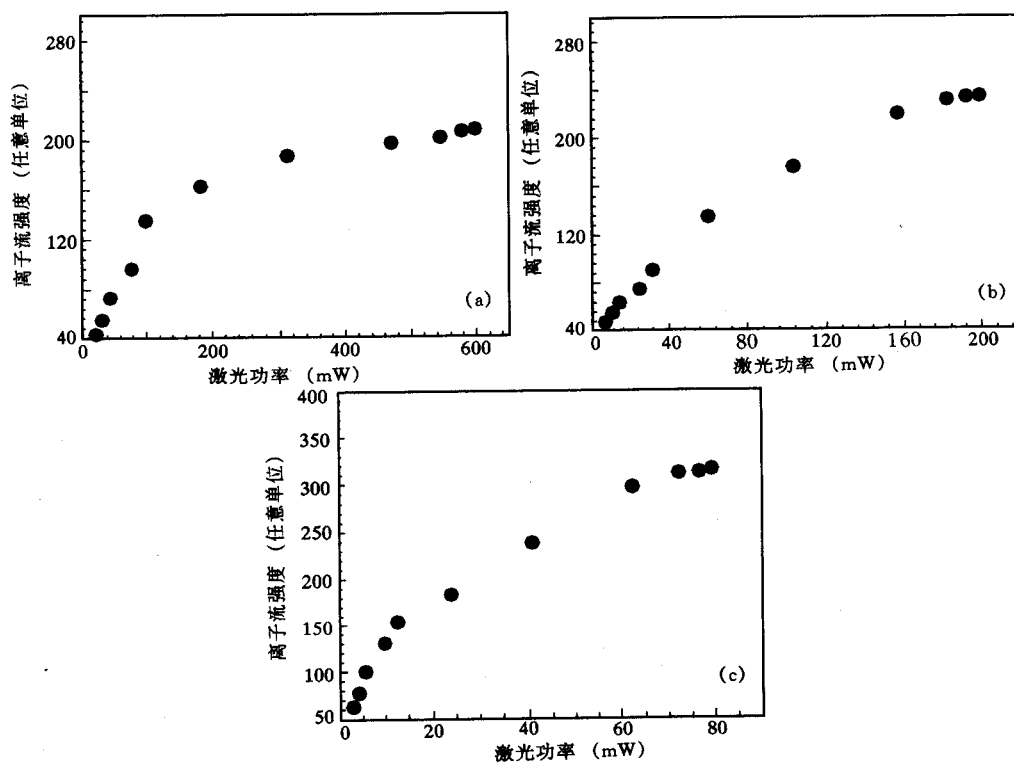


图5 Tm离子流与激光功率的关系

(a) $\lambda_3 = 575.5nm$, (b) $\lambda_2 = 571.2nm$; (c) $\lambda_1 = 589.6nm$.

波长扫描与离子流强度的关系曲线见图4,共振峰的出现表明多步共振电离已经实现. 激光功率与离子流的关系曲线见图5,在染料激光器的出口功率分别为0.1W,0.2W和0.6W时,共振激发和电离的条件已经达到了饱和. 在此条件下,改变毛细管的温度(使用光学

高温计测量毛细管的温度), 测量了有激光与无激光时的离子流值, 并且用离子流饱和值作归一化(结果见图 6). 由图中曲线可以看出, 在有激光时 Nb 管在 2000K 以上和 Ta 管在 2400K 以上离子流达到饱和, 表明在上述温度下, 材料表面发射电子产生的等离子体鞘势足以完全阻止正离子碰壁. 这个温度差别是由于不同材料的电子逸出功的不同所引起的. 从图上还可以得到, 在温度为 2000—2800K 范围内元素选择性为 50—10000^[12]. 元素 Tm 的电离电位是 6.2eV,

比 Ta 和 Nb 的电子逸出功高, 使表面电离受到抑制, 这是得到这么好的元素选择性的重要原因. 温度越高元素选择性越小, 因为温度的升高使热电离和表面电离效率增加, 从而引起无激光的本底离子也增加所致. 此外, Tm 的沸点是 1727℃, 并且在低于沸点温度时仍有很高的饱和蒸气压, 所以在上述温度下能快速的形成单原子, 也是获得好的元素选择性的原因之一. 从第二节分析可以看出, 即使存在有一定的热电离和表面电离效率下, 仍然有这么高的元素选择性, 可以推断激光电离效率 η 也很高.

本工作结果说明, 对于稀土元素和电离电位高于 6eV 并具有良好挥发性的元素, 在热毛细管式激光离子源中将具有好的元素选择性和高的电离效率.

我们已经在本所的在线分离器上安装了热毛细管式的激光离子源, 并且同一个可以加高温的靶室相连接, 使用上述激光技术, 并在靶室内放了 0.1g 金属 Yb, 加热使其蒸发并扩散到毛细管内, 仅使用波长为 555.6nm 和 581.1nm(见图 2) 两束激光得到了 Yb 的共振电离离子流. 进一步的实验正在进行中.

作者感谢俄罗斯光谱研究所的 V.I.Mishin 博士的讨论和帮助. 感谢核工业理化研究院激光室同行的帮助.

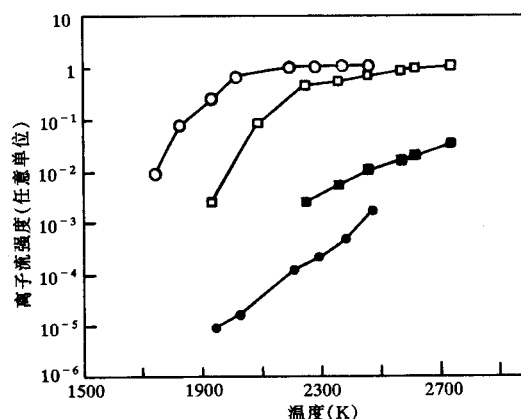


图 6 元素选择性的实验结果

○ Nb 的激光电离离子流; □ Ta 的激光电离离子流; ● Nb 无激光的离子流; ■ Ta 无激光的离子流.

参 考 文 献

- [1] Zhao Zhizheng, Hu Zhiqiang, Yang Weifan et al. High Energy Phys. and Nucl. Phys. (in Chinese), 1997, 21 (5):402—410
(赵之正, 胡志强, 杨维凡等. 高能物理与核物理, 1997, 21 (5):402—410)
- [2] Burkard K, Coiatz R, Hellstrom M et al. Nucl. Instr. and Meth., 1997, B126: 12—16
- [3] Mishin V I, Fedoseyev V N, Kluge H-J et al. Nucl. Instr. and Meth., 1993, B73: 550—560
- [4] Kudryavtsev Yu et al. Nucl. Instr. and Meth., 1996, B114: 350—365
- [5] Xu Sida, Shang Rencheng et al. High Energy Phys. and Nucl. Phys. (in Chinese), 1995, 19 (12):1068—1071
(徐四大, 尚仁成等. 高能物理与核物理, 1995, 19 (12):1068—1071)

- [6] Lee J K P et al. Nucl. Instr. and Meth, 1987, **B26**: 444—447
- [7] Fedoseyev V N, Jading Y, Jonsson O C et al. Z. Phys., 1995, **A353**:9—11
- [8] Bernas M et al. Nucl. Phys., 1997, **A616**:352—358
- [9] Letokhov V S. Laser in Atomic, Molecular and Nuclear Physics, ed by V. S. Letokhov 1984. 1—100
- [10] Kirchner R. Nucl. Instr. and Meth., 1981, **168**:275—293
- [11] Kirchner R. Nucl. Instr. and Meth., 1987, **B26**:204—212
- [12] Zhao Zhizheng, Yang Yongfeng et al. Chense Journal of Nuclear Physics, 1997, **19**(1):48—52

The Element Selectivity and Laser Technique of the Laser Ion Source Used for On-line Isotope Separator *

Zhao Zhizheng Yang Yongfeng Zheng Zhaomiao Zu Kailing
Wang Xudong Pat. Somerville Cai Xichen

(*Institute of Modern Physics, The Chinese Academy of Sciences, Lanzhou 730000*)

Shang Rencheng Xu Sida

(*Department of Physics, Tsinghua University, Beijing 100084*)

J. K. P. Lee

(*Department of Physics, McGill University, Canada*)

Abstract The necessity and possibility of improving the isotope separator on-line are analyzed. The principals of laser stepwise resonance ionization and laser ion source at ISOL are introduced. The element selectivity of the hot capillary type laser ion source and its influence factors are analyzed in detail. The lasers and laser technique used in the laser ion source are also described. The laser ion source of the capillary type was tested by the experiments. Its result proved that the laser ion source has an opportunity element selectivity from 50 to 10000.

Key words laser ion source, laser technique, element selectivity, on-line isotope separator

Received 1 August 1997

* Supported by Science Foundation of Chinese Academy of Sciences and the National Natural Science Foundation of China (19675051)